

## ⑫ 公開特許公報(A) 平3-228809

⑮ Int. Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成3年(1991)10月9日

C 01 B 21/072

F

7508-4G

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全4頁)

⑭ 発明の名称 窒化アルミニウム粉末の製造方法

⑰ 特 願 平2-23035

⑱ 出 願 平2(1990)2月1日

⑲ 発 明 者 堀 田 憲 康 新潟県新潟市五十嵐中島1601-3

⑲ 発 明 者 福 井 紘 一郎 大阪府堺市海山町6丁224番地 昭和アルミニウム株式会社内

⑲ 発 明 者 古 川 裕 一 大阪府堺市海山町6丁224番地 昭和アルミニウム株式会社内

⑲ 発 明 者 野 中 寿 一 大阪府堺市海山町6丁224番地 昭和アルミニウム株式会社内

⑳ 出 願 人 昭和アルミニウム株式会社 大阪府堺市海山町6丁224番地

㉑ 代 理 人 弁理士 清水 久義

## 明 細 書 (2)

## 1. 発明の名称

窒化アルミニウム粉末の製造方法

## 2. 特許請求の範囲

アルミニウム粉末を反応管中で窒素ガス流中に浮遊させつつ直接窒化反応せしめる浮遊式窒化法による窒化アルミニウム粉末の製造方法において、前記窒素ガスとして、20～10000ppmの酸素、及び／又は20～10000ppmの水分を混入したものを使用することを特徴とする窒化アルミニウム粉末の製造方法。

## 3. 発明の詳細な説明

## 産業上の利用分野

この発明は、熱伝導性、耐熱性、絶縁性に優れた電子材料用基板、金属溶融器等の材料に使用される窒化アルミニウム粉末（以下、AlN粉末）の製造方法に関する。

## 従来の技術

AlN粉末の製造方法としては、Al粉末からの直接窒化法や、アルミナ粉末からの炭素還

元法などがあるが、工業的には直接窒化法が一般に用いられている。

直接窒化法は、Al粉末とN<sub>2</sub>ガスとを直接接触反応せしめるものであるが、Al粉末の表面が窒化されると、初期の段階で、その表面に安定なAlN皮膜ができ、一種のシェル構造を形成して内部への窒化反応が抑制されてしまうため、このAlN皮膜を破ってから更に窒化反応せしめる必要を生じる。そのため、AlN粉末の製造には、窒化反応と粉砕とを交互に繰り返す必要を生じ、粉砕工程での汚染による純度低下の問題があった。

そこで、最近、上記欠点を排除しうる直接窒化法として、浮上式によるAlN粉末の製造方法が注目されている。

この浮上式直接窒化法は、耐熱材料、例えばアルミナ焼結体からなる反応管中で、Al粉末をN<sub>2</sub>ガス流で浮上させつつ高温に加熱し、窒化反応を進行せしめるものであり、粉砕工程が不要で高純度の、焼結に適した粒度の細かいAl

AlN粉末を直接に得ることができる。

この浮上式直接窒化法におけるAlN粉末の生成メカニズムについては、未だ充分な解明がなされている訳ではないが、一般に次のような推察がされている。即ち、反応初期の段階では、Al粉末はその表面部のみが窒化されてAlN皮膜を形成し、内部への窒化が阻害される減少をもたらす。しかし、続いてそのまま反応管中を浮上していく過程で更に昇温されることにより、表面のAlN皮膜と内部のAlとの熱膨張差、蒸気圧差に起因して、AlN皮膜に亀裂が発生し、その部分でまた新しい反応が生じ、その反応熱が蓄積された場合は、反応部付近の急激な温度上昇で、AlN皮膜の崩壊とともに熔融Alの飛出しを伴いつつ反応が加速度的連鎖進行を生じ、AlN皮膜の崩壊及び流出Alの二次窒化で、実質的に粉砕に相当するような微細なAlN粉末に生成される。

そして、かかる推察に基づき、AlN粉末を焼結により適合した微細なものにするため、反

応条件について様々な研究がなされている。即ち、上記の推察によれば、表面のAlN皮膜と内部のAlとの熱膨張差、蒸気圧差に起因して、AlN皮膜の崩壊とともに熔融Alの飛出しを伴いつつ反応が加速度的連鎖進行を生じ、AlN粉末に生成されるのであるから、特に温度、原料Al粉の粒径、昇温速度、加熱時間等を重要視して最適な微細化条件の究明がなされている。

#### 発明が解決しようとする課題

しかしながら、上記のようにしてつきとめられた最適条件の下で窒化反応を行って得られたAlN粉末を調べてみると、そのすべてが完全に微細化されるには至っておらず、少なからず内部が未反応Alの径大な粒子も含まれているというのが現状である。

本発明は、このような現状に鑑み、AlN粉末の微細化率を従来よりも一段と向上し、かつ未反応Alの減少された高純度のAlN粉末を製造する方法を提供することを目的とする。

#### — 3 —

#### 課題を解決するための手段

上記目的において、本発明者らは、更に一層の研究と実験を重ねていく過程で、次のような現象をつきとめるに至った。

即ち、従来の浮遊式直接窒化法ではAlN粉末を可及的に高純度のものにするために高純度ないし超高純度(99.999%以上)N<sub>2</sub>ガスを使用するのが普通であったが、これに対し、N<sub>2</sub>ガス中に不純物として含まれている酸素及び水分の量を増加させていくと、得られるAlN粉末の純度は若干の低下を見るものの、逆に微細化率の高いAlN粉末が生成される傾向が現れる。つまり、AlN粉末の微細化に関係する重要なファクターとして、温度等の他に、使用するN<sub>2</sub>ガス中の酸素量、水分量があった。

本発明は、このような解明をもとになされたもので、アルミニウム粉末を反応管中で窒素ガス流中に浮遊させつつ直接窒化反応せしめる浮遊式窒化法による窒化アルミニウム粉末の製造方法において、前記窒素ガスとして、20～1

#### — 4 —

0000ppmの酸素、及び/又は20～10000ppmの水分を混入したものをを使用することを特徴とする窒化アルミニウム粉末の製造方法を要旨とする。

酸素、水分はいずれもAlN粉末の微細化率を高める機能をもつ。そのメカニズムについては、現在のところ必ずしも明らかではないが、反応初期の段階でAl粉末の表面に形成される皮膜がAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>あるいはAl<sub>x</sub>O<sub>y</sub>N<sub>z</sub>を含むAlN皮膜となって、該皮膜を緻密化し硬化せしめ、崩壊しやすいものにする、及び窒素と反応して反応活性な化学種を生じせしめ、この化学種とAlと反応によって発生する熱でAl内部に沸騰を生じせしめてAlN皮膜の崩壊を促進することなどが推察される。

一方、酸素、水分を20～10000ppmの範囲に限定するのは、20ppmを下回ると結果的に微細化率の高いAlN粉末を得ることができず、また10000ppmを越えるとAlN粉末の純度が許容範囲を上回る結果となることによ

る。特に酸素40～10000ppm及び／又は水分100～10000ppmの混入された窒素ガスを使用するのが好ましい。

#### 実施例

以下、実施例を説明する。

本発明方法実施のために使用されるA<sub>2</sub>N粉末製造装置は、第1図に示されるように、大きく分けて供給部(A)と、反応部(B)と、捕集部(C)とを具備し、これらが単一のガス流路としての移送配管系を構成するように順次連結されたものである。

供給部(A)は、原料A<sub>2</sub>粉末(A<sub>2</sub>)を収容する粉末容器(1)と、高純度(99.99%)N<sub>2</sub>ガスボンベ(2)と、低純度(酸素及び／又は水分を一定量混入)N<sub>2</sub>ガスボンベ(3)とを具備している。そして、これらは二股分岐状の供給管(4)によって相互に接続され、両分岐管部(4a)(4b)に介設された流量調整弁(5a)(5b)を調整することによって酸素混入量及び／又は水分混入量の調整されたN

<sub>2</sub>ガスを粉末容器(1)内に供給するものとなっている。

なお、(6)はアジテーターで、粉末容器(1)内のA<sub>2</sub>粉末の凝集を防止し、A<sub>2</sub>粉末を、前記のようにして供給されるN<sub>2</sub>ガスの上昇気流に乗せて反応部(B)側に移送する補助的役割を果たすものである。また、(7)は両ポンベ(2)(3)から供給されるガスを混合するスタティックミキサー、(8)はバルブ、(9)はN<sub>2</sub>ガス中の酸素量及び／又は水分量を測定するためのサンプリング管である。

反応部(B)は、耐熱性材料としてのアルミナ焼結体からなる反応管(10)と、その周りに配置された加熱装置(11)とからなる。反応管(10)は、直接又は連結管を介して間接に、供給部(A)の粉末容器(1)に連通接続されており、その内部を供給部(A)側からN<sub>2</sub>ガス流に乗せ送られてくるA<sub>2</sub>粉末が流通する。そして、この流通過程で、加熱装置(11)からの加熱を受け、A<sub>2</sub>N粉末とN<sub>2</sub>ガスとの反応を

— 7 —

生じ、前述したようなA<sub>2</sub>N粉末の窒化が達成される。

捕集部(C)は、捕集容器(12)の上部にフィルター(13a)付きのN<sub>2</sub>ガス排出口(13)を設けたもので、該捕集容器(12)の天板部が連結管(14)を介して反応部(B)の反応管(10)の上端に連通接続されている。而して、反応部(B)を経てN<sub>2</sub>ガス流に乗って連結管(14)から移送されてくる反応済のA<sub>2</sub>N粉末は、捕集容器(12)内でN<sub>2</sub>ガスと分離され、その底部に堆積する一方、N<sub>2</sub>ガスは排出口(13)から系外に排出される。

以下に、上記の装置を用いて行った比較実験を述べる。

この実験では、反応管(10)として内径3.5mmのものを、またA<sub>2</sub>粉末として平均粒径15 $\mu$ mの99.99%アトマイズ粉を使用した。そして、N<sub>2</sub>ガスの流速を1.0ℓ/min、A<sub>2</sub>粉末の供給量を50mg/min、反応温度を1550°Cに設定し、かつN<sub>2</sub>ガス中の酸素混入

— 8 —

率及び水分混入率を第1表に示されるように変化させてA<sub>2</sub>N粉末の製造を行った。

第1表

	O <sub>2</sub> 濃度 (ppm)	H <sub>2</sub> O 濃度 (ppm)
従来例	10	10
実施例1	50	10
" 2	10	100
" 3	50	50
" 4	500	10
" 5	10	500

その結果、第2表に示されるように、この発明の実施による場合、従来法に比べて微細化率の向上されたA<sub>2</sub>N粉末を高反応率のもとに生成することができた。なお、A<sub>2</sub>N粉末中の酸素含有率が本発明による場合高く、その点で純度が従来よりも低いものになっているが、A<sub>2</sub>

N粉末の焼結には通常0.5%以上の酸素が必要とされ、のちに支障を生じるということはない。

第2表

	微細化率	酸素 (%)	反応率 (%)
従来例	悪	0.2	80
実施例1	良	0.5	100
" 2	良	0.7	100
" 3	良	0.7	100
" 4	良	4.0	100
" 5	良	4.0	100

## 発明の効果

上述の次第で、この発明のAlN粉末の製造方法は、窒素ガスとして、20~10000ppmの酸素、及び/又は20~10000ppmの水分を混入したものを使用する浮遊式直接窒化

法によるものとなされているから、生成されるAlN粉末の微細化率を従来よりも向上することができる。しかも、この微細化率の向上は同時に未反応Alの減少をもたらし、生成されたAlN粉末の高純度化にも寄与するものとなる。

## 4. 図面の簡単な説明

第1図はこの発明の実施に用いられるAlN粉末製造装置の一例を示す概略構成図である。

(10) …反応管。

以上

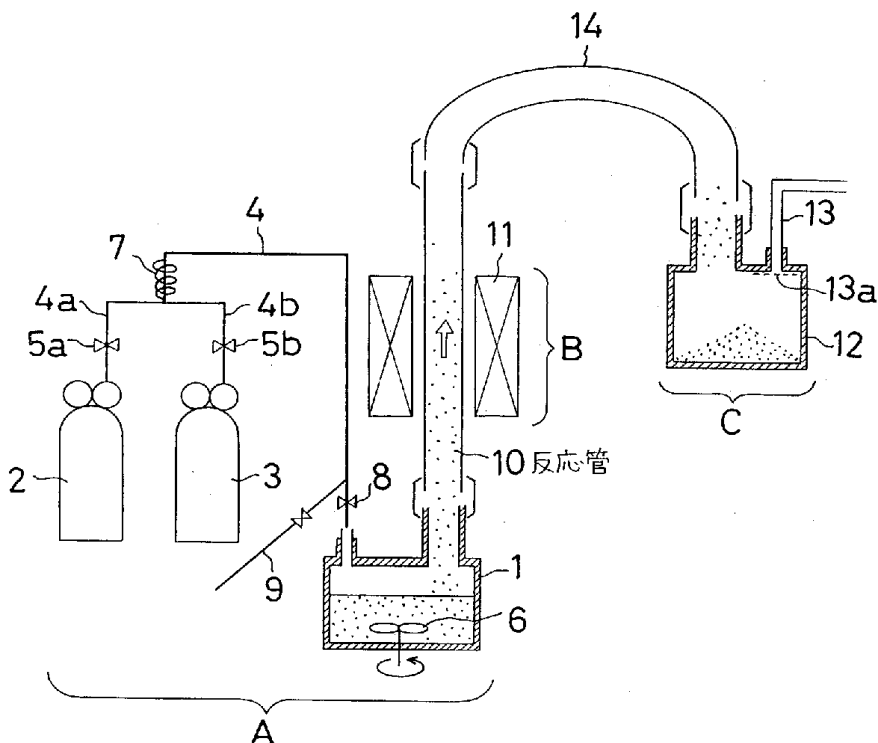
特許出願人 昭和アルミニウム株式会社

代理人 弁理士 清水久義



— 11 —

— 12 —



第1図

**PAT-NO:** JP403228809A  
**DOCUMENT-IDENTIFIER:** JP 03228809 A  
**TITLE:** PRODUCTION OF ALUMINUM  
NITRIDE POWDER  
**PUBN-DATE:** October 9, 1991

**INVENTOR-INFORMATION:**

NAME	COUNTRY
HOTTA, NORIYASU	
FUKUI, KOICHIRO	
FURUKAWA, YUICHI	
NONAKA, JUICHI	

**ASSIGNEE-INFORMATION:**

NAME	COUNTRY
SHOWA ALUM CORP	N/A

**APPL-NO:** JP02023035  
**APPL-DATE:** February 1, 1990

**INT-CL (IPC):** C01B021/072

**US-CL-CURRENT:** 423/412

**ABSTRACT:**

PURPOSE: To increase the rate of fining of AlN powder and the purity of the powder by suspending Al powder in a flow of gaseous nitrogen mixed with a prescribed amt. of gaseous oxygen and/or

moisture and bringing the suspended Al powder into a reaction.

CONSTITUTION: Al powder is suspended in a flow of gaseous nitrogen mixed with 20-10,000ppm gaseous oxygen and/or 20-10,000ppm moisture and the suspended Al powder is brought into a direct nitriding reaction. AlN powder obtd. by this suspension nitriding method has superior purity and the rate of fining of the powder is increased.

COPYRIGHT: (C)1991,JPO&Japio